

2013 年度 修士論文要旨

# CdTe 量子ドットの状態選択励起によるバンド内緩和の研究

関西学院大学大学院理工学研究科  
化学専攻 玉井研究室 森西 祐太

【序論】半導体量子ドット (QDs) の電子状態は 3 次元量子閉じ込めの為離散的であり、フォノン緩和が抑制されるにも関わらず超高速で緩和することが知られている。これらの過程は強いキャリア間相互作用や表面状態などが影響している事が明らかになっているが、これまで CdSe QDs に関してしか報告されていない。本研究では、異なる粒径の CdTe QDs を合成し、状態選択励起を用いたフェムト秒過渡吸収分光により、ホットキャリアのバンド内緩和過程を明らかにしたので報告する。

【実験】オレイン酸を保護剤として様々なサイズの CdTe QDs を 1-オクタデセン中で合成した。再生増幅した Ti:Sapphire レーザー (800 nm, 80~100 fs, 1 kHz) を光パラメトリック増幅器 (OPA) により励起波長を変化させ、QDs のバンド端付近の離散化した電子状態 (1S, 2S, 1P 遷移) を選択励起すると共に、プローブ光には基本波 (800 nm) を重水に集光させることで、発生した白色光を用いて過渡吸収分光測定を行った。図 1 に CdTe QDs の電子状態 (1S, 2S, 1P 遷移) を選択励起した時の模式図を記した。また、励起光強度は多励起子が生成しないように、1 粒子当りの平均生成励起子数  $\langle N_0 \rangle < 0.4$  の条件で実験を行った。異なる励起波長の過渡吸収スペクトルやダイナミクスを比較することにより、電子・正孔のバンド内緩和過程を明らかにした。

【結果・考察】図 2 に直径  $D = 5.1$  nm CdTe QDs の励起後 150 fs の過渡吸収スペクトルを示す。ここでは、図 2 の過渡吸収スペクトルを例にとり、観測されたシグナルについて考察する。

1) 1S 状態を選択励起した時、1S, 2S に対応するブリーチと 620 nm 付近に正の吸収を観測した。この正の吸収を A2 とする。1S, 2S 遷移は励起電

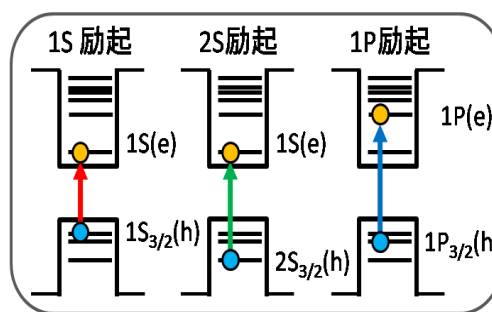


図 1. CdTe QDs の電子状態 (1S, 2S, 1P 状態) を選択励起した時の模式図

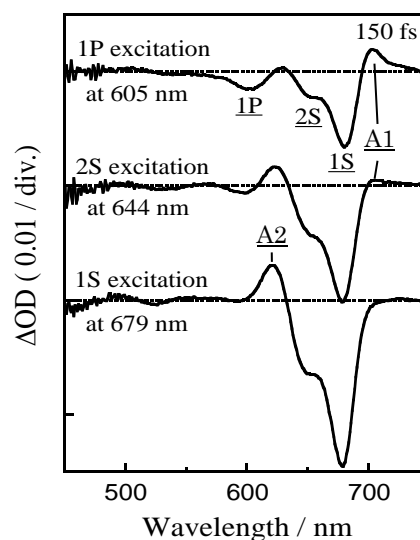


図 2.  $D = 5.1$  nm CdTe QDs の選択励起(1S, 2S, 1P 状態)した過渡吸収スペクトル(150 fs 後)

子が共に 1S(e)を占有することが知られているため、1S 励起においても 2S ブリーチが観測された。また、1S ブリーチは 1S(e)からの電子緩和過程に対応している。

2) 2S 状態を選択励起した時、1S, 2S ブリーチと 620 nm 付近の正の吸収及び 700 nm 付近に正の吸収を観測した。この 700 nm 付近の正の吸収を A1 とする。2S ブリーチは 1S(e)からの電子緩和過程に対応している。

3) 1P 状態を選択励起した時、1S, 2S, 1P ブリーチと正の吸収 A1 を観測した。1P ブリーチは 1P(e)からの電子の緩和過程に対応している。

正の吸収 A1 について考察する。図 2 より観測された正の吸収 A1 はシャープであるため、電子状態が密な高い励起状態への遷移ではない事がわかる。これは、1S-2S 二励起子間の相互作用 (2S 励起) 又は 1S-1P 二励起子間の相互作用 (1P 励起) により、一部の 1S 準位がレッドシフトすることで新しく生じた準位への 1S 吸収が観測されたのではないかと考えられる。また 1S 励起では A1 が観測されず、2S 励起・1P 励起では A1 が観測されたことから、A1 は  $2S_{3/2}(h)$  又は  $1P_{3/2}(h)$  状態の正孔の緩和過程に関係すると考えられる。図 3 に  $D = 5.1$  nm CdTe QDs の A1 での緩和ダイナミクスを記した。図 3 の緩和ダイナミクスを用いて解析した結果、2S-1S 間のホールの緩和時間は $\sim 310$  fs であった。

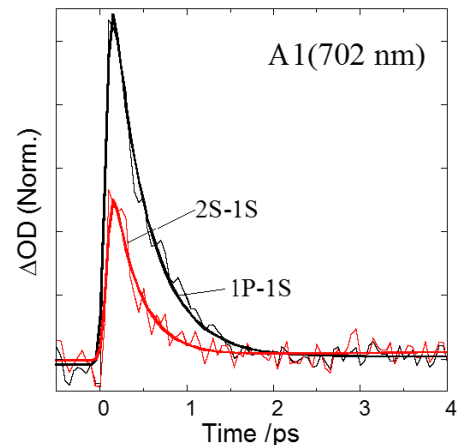


図 3.  $D = 5.1$  nm CdTe QDs の A1 での緩和ダイナミクス (1P-1S, 2S-1S は選択励起したダイナミクスの差を示す。)

次に正の吸収 A2 について考察する。図 2 より観測された正の吸収 A2 は A1 と同様に考える事ができる。1S-1P 二励起子間の相互作用により、一部の 1P 準位がレッドシフトすることで新しく生じた準位への 1P 吸収が観測されたのではないかと考えられる。また、A2 は 1P(e)からの電子の緩和過程に対応している。A2 の緩和ダイナミクスを用いて解析した結果、1P-1S 間の電子の緩和時間は $\sim 360$  fs であった。

最後に、CdTe QDs のバンド内緩和時間を用いて、電子及び正孔のエネルギー緩和速度の粒径依存性を解析し、CdSe QDs の文献と比較した。電子のエネルギー緩和速度の結果を図 4 に記す。図 4 より、1P-1S 間の電子のエネルギー緩和速度は、CdTe QDs が CdSe QDs よりも明らかに遅くなっていた。

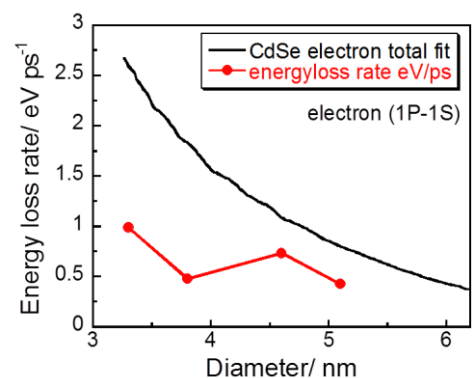


図 4. CdTe QDs と CdSe QDs の電子のエネルギー緩和速度の粒径依存性の比較